

論文内容の要旨

氏名 永澤嘉浩

セラミックスは原料粉体を成形し焼結することで製造されている。成形体の粒子充填構造は、焼結時の収縮挙動や焼結体の構造に作用し、製品の機械特性や光学特性にも大きな影響を与える。成形体の均質な粒子充填構造を達成するために、スラリーの粒子分散条件の検討が行われている。スラリーの分散性は粘度測定や沈降評価などで評価され、粒子間相互作用は原子間力顕微鏡による粒子間力測定で解析されている。これらの評価はスラリーの一般的な性質の評価には適しているが、成形体構造で問題となる、密度分布、粒度変動、粗充填構造、粗大粒子、粗大欠陥、および粒子配向等の不規則な充填構造と関連づけられていない。これらは分散しているとみなされるスラリーから成形体を作製した場合でも見られる。従って、スラリー中の実際の粒子状態を理解するとともに、粘度測定や沈降試験との関係も正確に把握する必要がある。そのためには、直接観察が有効であるが、スラリーの内部は粒子による光散乱が大きく不透明であるため、観察することができない。

本研究では、粒子と溶媒との屈折率を合わせた透明スラリーを用いて高濃度スラリー中の粒子運動を直接観察することを目的とした。この際に、成形時を想定したスラリー中の粒子の分散または凝集状態を理解することが重要である。例えば鋳込成形では、高濃度スラリー中の粒子がスラリーの中をゆっくりと移動し堆積する。テープ成形においても高濃度スラリーがせん断力を受けてシート状に展開され、粒子はせん断力を受けた後、溶媒の乾燥により固定化される。本研究では、これらの条件を想定したうえで、スラリーの分散・凝集性の他、粗大粒子および凝集体のスラリー中での粒子運動を解明することを試みた。観察には、共焦点レーザー走査型蛍光顕微鏡を用いてスラリー中の粒子群の断面像を直接観察した。非晶質シリカ球と屈折率を調整したグリセリン水溶液とを混合させることで透明な高濃度スラリーを調製した。蛍光像のために溶媒には蛍光剤を少量添加した。

成形条件を想定して、低速せん断速度下および沈降時の粒子運動観察を行った。低速せん断速度下では、粒度分布の影響、粗大粒子の影響、高分子添加による分散または凝集の影響について検討した。また、低せん断速度領域でのせん断応力の変化と対応させた。その結果、固体含有率が 0.3 のとき、試験を開始した直後に粒子群が少しずつ解膠される様子が確認された。粒度分布の広い粉体で調製したスラリーでは、進行方向に対して反対方向に周期的に移動する特異的な挙動も観察された。凝集スラリーでは、粘度測定では **Shear-thinning** 挙動を示し、観察では凝集体が鎖状粒子群の変形が確認された。

一方、沈降試験における粒子運動観察では堆積層付近および上部を観察した。固体含有率も変化させた。また、凝集体を多く含むスラリーの沈降および堆積挙動を観察した。その結果、低濃度では 1 次粒子が単独もしくは 2 粒子単位で揺動を示しながら沈降し、緻密な堆積層を形成した。堆積後もブラウン運動を示し、安定した位置に移動する様子が確認された。一方、高濃度系スラリーでは、粒子が互いに近い距離を保ちつつ、揺動しながら沈降する様子が観察された。スラリーの濃度が高いため堆積後も構造はほとんど変わらな

かった。凝集体が含まれる場合はその構造のまま沈降して堆積した。上部観察では一次粒子が液体の移動によって浮遊する様子も観察された。本研究により、一次粒子単位での分散の重要性、および、凝集体等の挙動および周囲への影響を直接観察によって明らかにすることができた。

以下、各章の概要を述べる。

第1章「序論」では、セラミックス製造におけるスラリーを用いた成形、スラリー中の粒子の分散・凝集の評価および問題点についてまとめ、本研究の目的を述べた。

第2章「蛍光透明高濃度スラリーの調製と内部粒子の構造観察」では、高濃度スラリー中の粒子を共焦点レーザー走査型蛍光顕微鏡によって直接観察するため蛍光透明スラリーを調製した。さらに、レオロジー測定の結果と粒子群の構造の関連させるために一定速度を印加できる治具を用いて粒子の運動を直接観察した。

第3章「粗大粒子を含む高濃度スラリーの複雑な粒子運動挙動」では、多分散系スラリーの複雑な粒子の運動に注目し、粗大粒子の影響を観察した。

第4章「分散・凝集性を制御した高濃度スラリー中の粒子運動の解明」では、分散または凝集させたスラリー中の粒子運動を観察し、運動とレオロジー特性を関連づけた。

第5章「重力場を用いた高濃度スラリー中の粒子の沈降および堆積過程」では、スラリーの沈降挙動および堆積過程に注目し、重力場における高濃度スラリー中の粒子の沈降および堆積過程の直接観察を試みた。

第6章で総括し、結論を述べた。